

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年    2 月 2 0 日  
Date of Application:

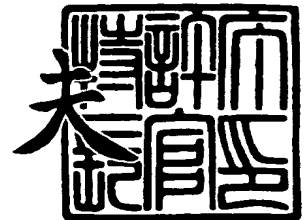
出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 0 4 2 9 6 7  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                      [ J P 2 0 0 3 - 0 4 2 9 6 7 ]

出      願      人                      J S R 株 式 会 社  
Applicant(s):                      本 田 技 研 工 業 株 式 会 社

2 0 0 3 年 1 0 月    6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



出証番号    出証特 2 0 0 3 - 3 0 8 2 2 2 8

【書類名】 特許願

【整理番号】 J010-10217

【提出日】 平成15年 2月20日

【あて先】 特許庁長官 殿

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区築地二丁目 1 1 番 2 4 号 ジェイエスアール株式会社内

【氏名】 樋上 誠

【発明者】

【住所又は居所】 東京都中央区築地二丁目 1 1 番 2 4 号 ジェイエスアール株式会社内

【氏名】 川井 淳司

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央 1 丁目 4 番 1 号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 福田 薫

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央 1 丁目 4 番 1 号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 松尾 順二

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央 1 丁目 4 番 1 号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 高橋 亮一郎

【発明者】

【住所又は居所】 埼玉県和光市中央 1 丁目 4 番 1 号 株式会社本田技術研究所内

【氏名】 濱 雄一郎

## 【特許出願人】

【識別番号】 000004178

【氏名又は名称】 ジェイエスアール株式会社

## 【特許出願人】

【識別番号】 000005326

【氏名又は名称】 本田技研工業株式会社

## 【代理人】

【識別番号】 100081994

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴木 俊一郎

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100103218

【弁理士】

【氏名又は名称】 牧村 浩次

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100107043

【弁理士】

【氏名又は名称】 高畑 ちより

## 【選任した代理人】

【識別番号】 100110917

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴木 亨

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 014535

【納付金額】 21,000円

## 【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9912908

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 電極用ペースト組成物

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

水素還元触媒が担持されたカーボンブラック、電解質、沸点が100℃～200℃の有機溶剤および沸点が100℃未満の水溶性有機溶剤を含有することを特徴とする電極用ペースト組成物。

【請求項 2】

上記沸点が100～200℃の有機溶剤が、炭化水素およびハロゲン化炭化水素を除く、溶解性パラメータの範囲が7.5～13(cal/mol)<sup>1/2</sup>にある溶剤であることを特徴とする請求項1に記載の電極用ペースト組成物。

【請求項 3】

さらに分散剤を含有することを特徴とする請求項1または2に記載の電極用ペースト組成物。

【請求項 4】

さらに炭素繊維を含有することを特徴とする請求項1ないし3のいずれか1項に記載の電極用ペースト組成物。

【請求項 5】

さらに水を含有することを特徴とする請求項1ないし4のいずれか1項に記載の電極用ペースト組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明が属する技術分野】

本発明は、燃料電池などの電極層を形成するための電極用ペースト組成物に関する。

【0002】

【従来技術】

燃料電池に用いられる電極層は、例えば水素還元触媒が担持されたカーボンを含む電極用ペースト組成物をカーボンペーパーに塗布、熱処理することにより製

造されている。

しかしながら従来の電極用ペースト組成物は、不均質なために保存安定性に問題があった。保存安定性を改良するために分散剤の添加を行うと、保存安定性は改良されるものの、該電極用ペースト組成物から調製した電極を用いた燃料電池では、触媒金属担持カーボンや電解質が密な状態の電極層を形成し、細孔容積が不十分であるため、燃料ガスや酸素ガスが反応触媒と接触できなくなり、また、生成する水がフラッディング等を引き起こして、発電性能が低下する現象がみられた。

### 【0003】

本発明者は、このような従来技術における問題点に鑑み検討した結果、電極用ペースト組成物に沸点が特定の温度範囲にある有機溶剤を添加して、電極形成時の乾燥条件での電極用ペースト組成物に含まれる溶媒の蒸発速度を制御することにより、保存安定性を維持しながら、発電性能を発揮するのに十分な細孔容積を保持しうる電極用ペースト組成物が得られることを見出して本発明を完成するに至った。

### 【0004】

#### 【発明が解決すべき課題】

すなわち本発明は、保存安定性に優れるとともに、発電特性に十分な細孔容積を保持しうる電極用ペースト組成物を提供することを目的としている。

### 【0005】

#### 【発明を解決するための手段】

本発明によれば下記電極用ペースト組成物が提供されて、本発明の前記目的が達成される。

(1) 水素還元触媒が担持されたカーボンブラック、電解質、沸点が100℃～200℃の有機溶剤および沸点が100℃未満の水溶性有機溶剤を含有する電極用ペースト組成物。

(2) 上記沸点が100～200℃の有機溶剤が、炭化水素およびハロゲン化炭化水素を除く溶解性パラメータの範囲が7.5～13(cal/mol)<sup>1/2</sup>にある溶剤である(1)に記載の電極用ペースト組成物。

(3) さらに分散剤を含有する (1) または (2) に記載の電極用ペースト組成物。

(4) さらに炭素繊維を含有する (1) ないし (3) のいずれかに記載の電極用ペースト組成物。

(5) さらに水を含有する (1) ないし (4) のいずれかに記載の電極用ペースト組成物。

#### 【0006】

##### 【発明の実施の形態】

以下、本発明についてより詳細に説明する。

本発明に係る電極用ペースト組成物は、水素還元触媒が担持されたカーボンブラック、電解質、沸点が100℃～200℃の有機溶剤および沸点が100℃未満の水溶性有機溶剤を含有し、さらに必要に応じて分散剤、炭素繊維、水から選ばれる少なくとも1つの成分を含有している。

#### 【0007】

まず、本発明に係る電極用ペースト組成物に含まれる各成分について説明する。

##### (水素還元触媒)

本発明で用いられる水素還元触媒としては、白金、パラジウム、金、ルテニウム、イリジウムなどの貴金属触媒が好ましく用いられる。また、貴金属触媒は合金、混合物など、2種以上の元素が含まれるものであってもよい。

#### 【0008】

##### (カーボンブラック)

本発明で用いられる上記水素還元触媒を担持するカーボンブラックとしては、オイルファーネスブラック、チャンネルブラック、ランプブラック、サーマルブラック、アセチレンブラックなどのカーボンブラックが、電子伝導性と比表面積の大きさから好ましいものである。

#### 【0009】

オイルファーネスブラックとしては、キャボット社製バルカンXC-72、バルカンP、ブラックパールズ880、ブラックパールズ1100、ブラックパー

ルズ 1300、ブラックパールズ 2000、リーガル 400、ライオン社製ケッチェンブラック EC、三菱化学社製 #3150、#3250 などが挙げられ、アセチレンブラックとしては電気化学工業社製デンカブラックなどの商標で市販されているものが挙げられる。

#### 【0010】

また本発明で用いられるカーボンブラックとして、天然の黒鉛、ピッチ、コークス、ポリアクリロニトリル、フェノール樹脂、フラン樹脂などの有機化合物から得られる人工黒鉛や炭素などを用いることもできる。

これらのカーボンブラックの形態としては、粒子状のほか繊維状も用いることができる。

#### 【0011】

##### (電解質)

本発明で用いられる電解質としては、触媒層内のプロトン伝導性を向上させるためにプロトン交換基を有するポリマーが好ましい。このようなポリマーに含まれるプロトン交換基としては、スルホン酸基、カルボン酸基、リン酸基などがあるが特に限定されるものではない。また、このようなプロトン交換基を有するポリマーも、特に限定されることなく選ばれるが、フルオロアルキルエーテル側鎖とフルオロアルキル主鎖とから構成されるプロトン交換基を有するポリマーや、スルホン化ポリアリーレンなどが好ましく用いられる。また、プロトン交換基を有する上述のフッ素原子を含むポリマーや、エチレンやスチレンなどから得られる他のポリマー、これらの共重合体やブレンドであっても構わない。

#### 【0012】

##### (沸点が 100℃～200℃の有機溶剤)

本発明において、電極用ペースト組成物を形成するための沸点 100℃～200℃の有機溶剤としては、n-ブチルアルコール (b.p. 117℃、 $\delta$  11.30)、2-メチル-1-プロパノール (b.p. 108℃、 $\delta$  11.11\*)、1-ペンタノール (b.p. 138℃、 $\delta$  10.96\*)、2-ペンタノール (b.p. 119℃、 $\delta$  10.77\*)、3-ペンタノール (b.p. 115℃、 $\delta$  10.77\*)、2-メチル-1-ブタノール (b.p. 129℃、 $\delta$  10.77\*



)、3-メチル-1-ブタノール (b p. 131℃、 $\delta$  10.77\*)、2-メチル-2-ブタノール (b p. 102℃、 $\delta$  10.58\*)、3-メチル-2-ブタノール (b p. 112℃、 $\delta$  10.58\*)、2,2-ジメチル1-プロパノール (b p. 113℃、 $\delta$  10.58\*)、シクロヘキサノール (b p. 161℃、 $\delta$  12.44\*)、1-ヘキサノール (b p. 157℃、 $\delta$  10.68\*)、2-メチル-1-ペンタノール (b p. 148℃、 $\delta$  10.51\*)、2-メチル-2-ペンタノール (b p. 121℃、 $\delta$  10.34\*)、4-メチル-2-ペンタノール (b p. 132℃、 $\delta$  10.34\*)、2-エチル-1-ブタノール (b p. 147℃、 $\delta$  10.51\*)、1-メチルシクロヘキサノール (b p. 156、 $\delta$  11.76\*)、2-メチルシクロヘキサノール (b p. 168℃、 $\delta$  11.74\*)、3-メチルシクロヘキサノール (b p. 168℃、 $\delta$  11.74\*)、4-メチルシクロヘキサノール (b p. 171℃、 $\delta$  11.74\*)、1-オクタノール (b p. 195℃、 $\delta$  10.28\*)、2-オクタノール (b p. 180℃、 $\delta$  10.14\*)、2-エチル-1-ヘキサノール (b p. 184℃、 $\delta$  10.14\*)、ジオキサシタン (b p. 101℃、 $\delta$  10.0)、ブチルエーテル (b p. 140℃、 $\delta$  7.78\*)、フェニルエーテル (b p. 187℃、 $\delta$  12.16)、イソペンチルエーテル (b p. 173℃、 $\delta$  7.63\*)、ジエトキシエタン (b p. 102℃、 $\delta$  7.63\*)、ビス(2-メトキシエチル)エーテル (b p. 160℃、 $\delta$  8.10\*)、ビス(2-エトキシエチル)エーテル (b p. 189℃、 $\delta$  8.19\*)、シネオール (b p. 176℃、 $\delta$  8.97\*)、ベンジルエチルエーテル (b p. 185℃、 $\delta$  9.20\*)、アニソール (b p. 154℃、 $\delta$  9.38\*)、フェネトール (b p. 170℃、 $\delta$  9.27\*)、アセタール (b p. 104℃、 $\delta$  7.65\*)、2-ペンタノン (b p. 102℃、 $\delta$  8.30\*)、3-ペンタノン (b p. 102℃、 $\delta$  8.30\*)、シクロペンタノン (b p. 131℃、 $\delta$  12.81\*)、シクロヘキサノン (b p. 156℃、 $\delta$  9.88)、2-ヘキサノン (b p. 128℃、 $\delta$  8.84\*)、4-メチル-2-ペンタノン (b p. 117℃、 $\delta$  8.68\*)、2-ヘプタノン (b p. 151℃、 $\delta$  8.84\*)、2,4-ジメチル-3-ペンタノン (b p. 125℃、 $\delta$  8.49)、2-オクタ

ノン (b p. 173℃、 $\delta$  8.81\*)、酢酸-n-ブチル (b p. 126℃、 $\delta$  8.46)、酢酸イソブチル (b p. 126℃、 $\delta$  8.42)、酢酸sec-ブチル (b p. 112℃、 $\delta$  8.51\*)、酢酸ペンチル (b p. 150℃、 $\delta$  8.69\*)、酢酸イソペンチル (b p. 142℃、 $\delta$  8.52\*)、3-メトキシブチルアセタート (b p. 173℃、 $\delta$  8.52\*)、酪酸メチル (b p. 102℃、 $\delta$  8.72\*)、酪酸エチル (b p. 121℃、 $\delta$  8.70\*)、乳酸メチル (b p. 145℃、 $\delta$  12.42\*)、乳酸エチル (b p. 155℃、 $\delta$  10.57)、乳酸ブチル (b p. 185℃、 $\delta$  11.26\*)、2-メトキシエタノール (b p. 125℃、 $\delta$  11.98\*)、2-エトキシエタノール (b p. 136℃、 $\delta$  11.47\*)、2-(メトキシメトキシ)エタノール (b p. 168℃、 $\delta$  11.60\*)、2-イソプロポキシエタノール (b p. 142℃、 $\delta$  10.92\*)、1-メトキシ-2-プロパノール (b p. 120℃、 $\delta$  11.27\*)、1-エトキシ-2-プロパノール (b p. 132℃、 $\delta$  10.92\*)、ジメチルスルホキシド (b p. 189℃、 $\delta$  12.93)、N-メチルホルムアミド (b p. 185℃、 $\delta$  12.93)、N,N-ジメチルホルムアミド (b p. 153℃、 $\delta$  12.14)、N,N-ジエチルホルムアミド (b p. 178℃、 $\delta$  10.07\*)、N,N-ジメチルアセトアミド (b p. 166℃、 $\delta$  11.12)などを挙げることができ、これらは1種類以上を組み合わせ用いることもできる。

#### 【0013】

なお、上記例示中 $\delta$ は溶解性パラメータの値 ( $(\text{cal/mol})^{1/2}$ )を示し、数値の後に「\*」を付した値は、F e l d o r の計算値 (R. F. F e d o r s, P o l y m. E n g. S c i., 14 [2] 147 (1974) 参照)である。

本発明では、上記沸点が100～200℃の有機溶剤として、炭化水素およびハロゲン化炭化水素を除く溶解性パラメータの値が7.5～13 ( $\text{cal/mol})^{1/2}$ の範囲がある溶剤を用いることが好ましい。

#### 【0014】

さらに、沸点が110℃～150℃の範囲であることが好ましく、さらに、溶解性パラメータの値が8.0～11.5 ( $\text{cal/mol})^{1/2}$ の範囲にあることが好まし

く、さらに、電解質に対して貧溶媒である溶剤であることが好ましい。有機溶剤としてこのような溶剤を用いると、電極用ペースト組成物から電極層を形成したときに電極層中の細孔容積が増加して、燃料ガスや酸素ガスの拡散性が向上し、また、生成する水によるフラッディング等を改善でき、発電性能が向上する。

#### 【0015】

(沸点が100℃未満の水溶性有機溶剤)

本発明で用いられる沸点が100℃未満の水溶性有機溶剤としては、例えば、メタノール、エタノール、*n*-プロピルアルコール、2-プロパノール、2-メチル-2-プロパノール、2-ブタノール、イソブチルアルコールなどのアルコール類；フラン、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピランなどの環状エーテル類；アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類を挙げることができ、これらは1種類以上を組み合わせ用いることもできる。

#### 【0016】

(分散剤)

本発明に係る電極用ペースト組成物では、必要に応じてさらに分散剤を添加することができる。

本発明で必要に応じて用いられる分散剤としては、ラウリン酸ナトリウム、ステアリン酸ナトリウム、オレイン酸ナトリウム、ラウリル硫酸エステルナトリウム塩、セチル硫酸エステルナトリウム塩、ステアリル硫酸エステルナトリウム塩、オレイル硫酸エステルナトリウム塩、ラウリルエーテル硫酸エステル塩、アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム、油溶性アルキルベンゼンスルホン酸塩、 $\alpha$ -オレフィンスルホン酸塩、高級アルコールリン酸モノエステルジナトリウム塩、高級アルコールリン酸ジエステルジナトリウム塩、ジアルキルジチオリン酸亜鉛等のアニオン界面活性剤；高級アルキルアミン塩、高級アルキルアミンエチレンオキサイド付加物、2-ヘプタデセニル-ヒドロキシエチルイミダゾリン、アルキルトリメチルアンモニウム塩、アルキルジメチルベンジルアンモニウム塩、アルキルピリジウム塩、高分子量ポリエステル酸アמידアミン塩等のカチオン界面活性剤；ラウリルアミノプロピオン酸ナトリウム、ステアリルジメチルベタイン、ラウリルジヒドロキシエチルベタイン等の両性界面活性剤；高級アルコー

ルエチレンオキサイド付加物、アルキルフェノールエチレンオキサイド付加物、脂肪酸エチレンオキサイド付加物、高級脂肪族アミンのエチレンオキサイド付加物、脂肪酸アミドのエチレンオキサイド付加物、ポリプロピレングリコールエチレンオキサイド付加物、グリセリンの脂肪酸エステル、ペンタエリスリットの脂肪酸エステル、ソルビットの脂肪酸エステル、ソルビタンの脂肪酸エステル、砂糖の脂肪酸エステル、脂肪酸アルカノールアミド等の非イオン界面活性剤などを挙げることができる。これらは1種類以上を組み合わせることもできる。これらのうち、好ましくは塩基性界面活性剤であり、さらに好ましくは塩基性高分子界面活性剤である。

#### 【0017】

電極用ペースト組成物に分散剤をさらに添加すると、保存安定性がさらに優れる。

(炭素繊維)

本発明に係る電極用ペースト組成物では、必要に応じてさらに炭素繊維を添加することができる。

#### 【0018】

本発明で必要に応じて用いられる炭素繊維としては、レーヨン系炭素繊維、PAN系炭素繊維、リグニンポパー系炭素繊維、ピッチ系炭素繊維、気相成長炭素繊維等を用いることができ、好ましくは、気相成長炭素繊維である。

電極用ペースト組成物に炭素繊維をさらに添加すると、電極用ペースト組成物から電極層を形成したときに電極層中の細孔容積が増加して、燃料ガスや酸素ガスの拡散性が向上し、また、生成する水によるフラッディング等を改善でき、発電性能が向上する。

#### 【0019】

(水)

本発明に係る電極用ペースト組成物では、必要に応じてさらに水を添加することができる。

電極用ペースト組成物に水をさらに添加すると、電極用ペースト組成物調製時の発熱および発火の危険性を低減する効果がある。

**【0020】****(組成)**

本発明において、水素還元触媒が担持されたカーボンブラックの使用割合は、重量比で1重量%～20重量%、好ましくは3重量%～10重量%であり、電解質の使用割合は、重量比で1重量%～30重量%、好ましくは1重量%～15重量%であり、沸点が100℃～200℃の有機溶剤の使用割合は、重量比で1重量%～90重量%、好ましくは1重量%～50重量%であり、沸点が100℃未満の水溶性有機溶剤の使用割合は、重量比で1重量%～95重量%、好ましくは30重量%～80重量%であり、必要に応じて用いられる分散剤の使用割合は、重量比で0重量%～10重量%、好ましくは0重量%～2重量%であり、必要に応じて用いられる炭素繊維の使用割合は、重量比で0重量%～20重量%、好ましくは1重量%～10重量%であり、必要に応じて用いられる水の使用割合は重量比で0重量%～70重量%、好ましくは、5重量%～30重量%である。

**【0021】**

水素還元触媒が担持されたカーボンブラックの使用割合が、上記範囲より少ないと電極反応率が低下する。また、上記範囲より多いと、電極ペーストの粘度が増加し、塗工時に塗りむらが発生する。

電解質の使用割合が、上記範囲より少ないと、プロトン伝導度が低下する。さらに、バインダーとしての役割を果たせなくなり、電極を形成できない。また、上記範囲より多いと、電極中の細孔容積が減少する。

**【0022】**

沸点が100℃～200℃の有機溶剤の使用割合が、上記範囲内にあると電極中の細孔容積が増加する。

沸点が100℃未満の水溶性有機溶剤の使用割合が、上記範囲内にあると電極形成時の塗工性に優れる。

分散剤の使用割合が、上記範囲内にあると保存安定性に優れた電極ペーストが得られる。

**【0023】**

炭素繊維の使用割合が、上記範囲より少ないと、電極中の細孔容積の増加効果

が低い。また、上記範囲より多いと、電極反応率が低下する。

水の使用割合が、上記範囲内にあると電極ペースト作製時の発熱および発火の危険性を低減できる。

(組成物の調製)

本発明に係る電極用ペースト組成物は、例えば上記各成分を所定の割合で混合し、従来公知の方法で混練することにより調製することができる。

#### 【0024】

各成分の混合順序は特定に限定されないが、例えば全ての成分を混合して一定時間攪拌を行うか、分散剤以外の成分を混合して一定時間攪拌を行った後、必要に応じて分散剤を添加して一定時間攪拌を行うことが好ましい。

(塗布)

本発明に係る電極用ペースト組成物は、電極触媒層の電極基材またはプロトン伝導膜へ塗布される。

#### 【0025】

塗布方法としては、刷毛塗り、筆塗り、バーコーター塗布、ナイフコーター塗布、スクリーン印刷、スプレー塗布などがあり、他の基材（転写基材）上に塗布して電極触媒層をいったん形成した後、電極基材またはプロトン伝導膜に転写してもよい。この場合の転写基材としては、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）のシート、または表面を離型剤処理したガラス板や金属板なども用いることができる。

#### 【0026】

電極基材としては、燃料電池に一般に用いられる電極基材が特に限定されることがなく用いられる。例えば、導電性物質を主たる構成材とする多孔質導電シートなどが挙げられ、この導電性物質としては、ポリアクリロニトリルからの焼成体、ピッチからの焼成体、黒鉛および膨張黒鉛などの炭素材、ステンレススチール、モリブデン、チタンなどが例示される。導電性物質の形態は繊維状または粒子状など特に限定されないが、繊維状導電性無機物質（無機導電性繊維）特に炭素繊維が好ましい。無機導電性繊維を用いた多孔質導電シートとしては、織布または不織布いずれの構造も使用可能である。織布としては、平織、斜文織、朱子織

、紋織、綴織など特に限定されることなく用いられる。また、不織布としては、抄紙法、ニードルパンチ法、スパンボンド法、ウォータージェットパンチ法、メルトブロー法などの方法で製造されたものが特に限定されることなく用いられる。また無機導電性繊維を用いた多孔質導電シートは編物であっても構わない。

#### 【0027】

これらの布帛として特に炭素繊維を用いる場合、耐炎化紡績糸を用いた平織物を炭化または黒鉛化した織布、耐炎化糸をニードルパンチ法やウォータージェットパンチ法などによる不織布加工をした後に炭化または黒鉛化した不織布、耐炎化糸または炭化糸または黒鉛化糸を用いた抄紙法によるマット不織布などが好ましい。例えば、東レ製カーボンペーパーTGPシリーズ、SOシリーズ、E-T EK社製カーボクロスなどが好ましく用いられる。

#### 【0028】

多孔質導電シートには、導電性向上のために補助剤としてカーボンブラックなどの導電性粒子や、炭素繊維などの導電性繊維を添加することも好ましい実施態様である。

#### 【0029】

##### 【実施例】

以下、実施例に基づいて本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

#### 【0030】

##### 【実施例1】

##### 〔ペーストAの調製〕

50mlのガラス瓶に直径10mmのジルコニアボール（商品名：YTZボール、株式会社ニッカトー製）25gを入れ、白金担持カーボン粒子（Pt：46重量%担持）1.68g、蒸留水 2.55g、Nafion（商品名、Dupont社製）の20.6%水-アルコール溶液（水：アルコール＝20：60）6.14g、n-プロピルアルコール 9.14g、添加溶剤としてn-ブチルアルコール 4.3g、気相法炭素繊維（商品名：VGCF、昭和電工社製）0.46gおよび分散剤（商品名：DA234、楠本化成株式会社製）0.036

gを加え、ウェーブローターで70分間攪拌し、粘度70 c p (25℃)のペーストAを得た。

### 【0031】

#### [評価]

カーボンペーパー上に、ペーストAを白金塗布量が0.5 mg/cm<sup>2</sup>になるようにドクターブレードを用いて塗布した。これを95℃で10分間加熱乾燥し、電極層を形成させ、下記に示す評価を行った。結果を表1、表2に示す。

#### (細孔分布・細孔容積測定)

水銀ポロシメータを用いて水銀圧入法により、得られた電極の細孔分布および細孔容積を測定した。

### 【0032】

#### (燃料電池の作成及び性能の評価)

膜厚35 μmのN a f i o n (商標)膜を1枚用意し、2枚の電極層で挟み、圧力40 k g/cm<sup>2</sup>下で、160℃×15 m i nの条件でポットプレスで成形して、電極接合体を作製した。次に、作製した電極膜接合体を2枚のチタン製の集電体で挟み、さらにその外側にヒーターを配置し、有効面積25 c m<sup>2</sup>の燃料電池を組み立てた。

### 【0033】

燃料電池の温度を50℃に保ち、湿度90% R H以上で水素および酸素を2気圧で供給し、電流密度0.5 A/cm<sup>2</sup>と1.0 A/cm<sup>2</sup>のときの端子間電圧を測定した。

また、燃料電池の温度を80℃に保ち、湿度90% R H以上で水素および酸素を2気圧で供給し、電流密度0.5 A/cm<sup>2</sup>と1.0 A/cm<sup>2</sup>のときの端子間電圧を測定した。

#### (電極ペースト組成物の保存安定性評価)

電極ペースト組成物を20 c cのガラス瓶に充填し、室温で1週間、静置させる。そして、電極ペーストの上部および下部液をそれぞれ0.5 c c採取し、95℃×10 m i nの条件でホットプレートで乾燥させ、上部、下部液の固形分濃度の変化より、粒子沈降の有無を確認した。



## 【0034】

評価：○…上部液、下部液の固形分濃度に差がない

×…下部液の固形分濃度が上部液の固形分濃度よりも高い

## 【0035】

## 【実施例2】

## [ペーストBの調製]

50mlのガラス瓶に直径10mmのジルコニアボール（商品名：YTZボール、株式会社ニッカトー製）25gを入れ、白金担持カーボン粒子（Pt：46重量%担持）1.68g、蒸留水 2.55g、Nafion（商品名、DuPont社製）の20.6%水-アルコール溶液（水：アルコール=20：60）6.14g、n-プロピルアルコール 9.14g、添加溶剤として酢酸-n-ブチル 13.3g、気相法炭素繊維（商品名：VGCF、昭和電工社製）0.46gを加え、ウエーブローターで30分間攪拌した後に、分散剤（商品名：DA234、楠本化成株式会社製）0.036gを加え、ウエーブローターで40分間攪拌し、粘度15cp（25℃）のペーストBを得た。

## 【0036】

## [評価]

ペーストAに代えてペーストBを用いた以外は、実施例1と同様にして電極及び燃料電池を製造し、評価を行った。結果を表1、表2に示す。

## 【0037】

## 【実施例3】

## [ペーストCの調製]

n-ブチルアルコールに代えて1-エトキシ-2-プロピルアルコールを4.3g用いた以外は実施例1の「ペーストAの調製」と同様にして、粘度60cp（25℃）のペーストCを得た。

## 【0038】

## [評価]

ペーストAに代えてペーストCを用いた以外は、実施例1と同様にして電極及び燃料電池を製造し、評価を行った。結果を表1、表2に示す。

## 【0039】

## 【比較例1】

## [ペーストDの調製]

50mlのガラス瓶に直径10mmのジルコニアボール（商品名：YTZボール、株式会社ニッカトー製）25gを入れ、白金担持カーボン粒子（Pt：46重量%担持）1.68g、蒸留水 2.55g、Nafion（商品名、DuPont社製）の20.6%水-アルコール溶液（水：アルコール＝20：60）6.14g、n-プロピルアルコール 13.4g、気相法炭素繊維（商品名：VGCF、昭和電工社製）0.46gおよび分散剤（商品名：DA234、楠本化成株式会社製）0.036gを加え、ウェーブローターで70分間攪拌し、粘度65cp（25℃）のペーストDを得た。

## 【0040】

## [評価]

ペーストAに代えてペーストDを用いた以外は、実施例1と同様にして電極及び燃料電池を製造し、評価を行った。結果を表1、表2に示す。

## 【0041】

## 【比較例2】

## [ペーストEの調製]

n-ブチルアルコールに代えて酢酸エチルを9.9g用いた以外は実施例1の「ペーストAの調製」と同様にして、粘度30cp（25℃）のペーストEを得た。

## 【0042】

## [評価]

ペーストAに代えてペーストEを用いた以外は、実施例1と同様にして電極及び燃料電池を製造し、評価を行った。結果を表1、表2に示す。

## 【0043】

## 【比較例3】

## [ペーストFの調製]

n-ブチルアルコールに代えてシクロヘキサンを4.3g用いた以外は実施例

1の「ペーストAの調製」と同様にして、粘度75cp(25℃)のペーストFを得た。

#### 【0044】

##### [評価]

ペーストAに代えてペーストFを用いた以外は、実施例1と同様にして電極及び燃料電池を製造し、評価を行った。結果を表1、表2に示す。

#### 【0045】

##### 【比較例4】

##### [ペーストGの調製]

50mlのガラス瓶に直径10mmのジルコニアボール(商品名:YTZボール、株式会社ニッカトー製)25gを入れ、白金担持カーボン粒子(Pt:46重量%担持)1.68g、蒸留水2.55g、Nafion(商品名、DuPont社製)の20.6%水-アルコール溶液(水:アルコール=20:60)6.14g、n-プロピルアルコール13.4g、気相法炭素繊維(商品名:VGCF、昭和電工社製)0.46gを加え、ウェーブローターで70分間攪拌し、粘度550cp(25℃)のペーストGを得た。

#### 【0046】

##### [評価]

ペーストAに代えてペーストGを用いた以外は、実施例1と同様にして電極及び燃料電池を製造し、評価を行った。結果を表1、表2に示す。

#### 【0047】

##### 【表1】

表 1

	ベースト	分散剤の有無	添加溶剤	沸点 (°C)	膜厚 ( $\mu\text{m}$ )	細孔容積 ( $\text{ml/g}$ )			保存安定性
						0.01 $\mu\text{m}$ ~0.1 $\mu\text{m}$	0.1 $\mu\text{m}$ ~1.0 $\mu\text{m}$	Total	
実施例 1	A	有	n-ブタノール 18%	118	25	0.20	0.45	0.65	○
実施例 2	B	有	酢酸ブチル 40%	127	26	0.24	0.52	0.76	○
実施例 3	C	有	1-エトキシ-2-プロピルアルコール 18%	132	25	0.20	0.44	0.64	○
比較例 1	D	有	無		20	0.09	0.24	0.33	○
比較例 2	E	有	酢酸エチル 33%	77	21	0.15	0.20	0.35	○
比較例 3	F	有	シクロヘキサン 18%	80.7	20	0.08	0.22	0.30	○
比較例 4	G	無	無		23	0.15	0.25	0.40	×

【0048】

【表2】

表 2

温度・湿度条件		低温高加湿 (50℃、RH 90%以上)		高温高加湿 (80℃、RH 90%以上)	
電流密度 (A/cm <sup>2</sup> )		0.5	1.0	0.5	1.0
端子電圧 (V)	実施例 1	0.68	0.49	0.72	0.58
	実施例 2	0.70	0.50	0.75	0.62
	実施例 3	0.65	0.45	0.71	0.55
	比較例 1	0.32	—	0.40	—
	比較例 2	0.41	—	0.49	—
	比較例 3	0.33	—	0.38	—
	比較例 4	0.45	0.25	0.53	0.32

—: 1 A/cm<sup>2</sup>まで電流値を上げられなかったため測定不可能。

【0049】

## 【発明の効果】

以上のことから明らかなように、本発明は、従来用いられる分散剤添加の保存安定性を改良した電極触媒ペーストに沸点100℃～200℃の有機溶剤を添加

することで、電極形成時の乾燥条件でのペースト溶媒の蒸発速度を制御することにより、保存安定性を維持しながら、細孔容積を向上させることができ、反応ガスと反応触媒との接触を良好にするとともに、生成する水によるフラッディング等を改善し、発電性能が向上できる。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 保存安定性を維持しながら、発電特性に十分な細孔容積を保持する電極用ペースト組成物を提供すること。

【解決手段】 電極用ペースト組成物は、水素還元触媒が担持されたカーボンブラック、電解質、沸点が 1 0 0 ℃ ～ 2 0 0 ℃ の有機溶剤および沸点が 1 0 0 ℃ 未満の水溶性有機溶剤、必要に応じて分散剤、炭素繊維、水から選ばれる少なくとも 1 つの成分を含有する。

【選択図】 なし

特願 2003-042967

出願人履歴情報

識別番号 [000004178]

1. 変更年月日 1997年12月10日  
[変更理由] 名称変更  
住 所 東京都中央区築地2丁目11番24号  
氏 名 ジェイエスアール株式会社
2. 変更年月日 2003年 5月 6日  
[変更理由] 住所変更  
住 所 東京都中央区築地五丁目6番10号  
氏 名 ジェイエスアール株式会社
3. 変更年月日 2003年 9月 1日  
[変更理由] 名称変更  
住 所 東京都中央区築地五丁目6番10号  
氏 名 J S R 株式会社



特願 2003-042967

出願人履歴情報

識別番号

[000005326]

1. 変更年月日

1990年 9月 6日

[変更理由]

新規登録

住 所

東京都港区南青山二丁目1番1号

氏 名

本田技研工業株式会社